

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
29. April 2004 (29.04.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 2004/035555 A1 not. JS(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C07D 277/56,  
A01N 37/22, 43/78

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/010758

(22) Internationales Anmeldedatum:  
26. September 2003 (26.09.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
102 46 959.8 9. Oktober 2002 (09.10.2002) DE(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): BAYER CROPSCIENCE AG [DE/DE]; Alfred-No-  
bel-Str. 50, 40789 Monheim (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DUNKEL, Ralf  
[DE/DE]; Krischer Str. 22, 40789 Monheim (DE). ELBE,  
Hans-Ludwig [DE/DE]; Dasnöckel 59, 42329 Wupper-  
tal (DE). RIECK, Heiko [DE/FR]; 9 rue Claude Monet,  
F-69110 Ste Foy les Lyon (FR). WACHENDORFF-NEU-  
MANN, Ulrike [DE/DE]; Oberer Markweg 85, 56566  
Neuwied (DE). KUCK, Karl-Helz [DE/DE]; Pas-  
tor-Löh-Str. 30 a, 40764 Langenfeld (DE).(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER CROPSCIENCE AG;  
Law and Patents, Patents and Licensing, 51368 Leverkusen  
(DE).(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,  
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD,  
GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR,KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN,  
MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU,  
SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,  
UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,  
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),  
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,  
TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE,  
DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL,  
PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG,  
CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

## Erklärungen gemäß Regel 4.17:

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW, ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)
- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, die Priorität einer früheren Anmeldung zu beanspruchen (Regel 4.17 Ziffer iii) für alle Bestimmungsstaaten

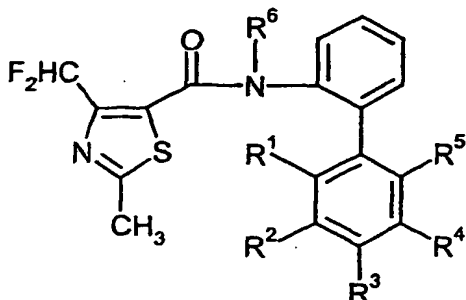
## Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: THIAZOLYL BIPHENYL AMIDES

(54) Bezeichnung: THIAZOLYLBIPHENYLAMIDE



(I)

(57) Abstract: The invention relates to novel thiazolyl biphenyl amides of formula (I) wherein R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> and R<sup>6</sup> have the designations cited in the description. The invention also relates to a method for producing said substances and to the use thereof for fighting undesired micro-organisms.

(57) Zusammenfassung: Neue Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) in welcher R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben, ein Verfahren zum Herstellen dieser Stoffe und deren Verwendung zum Bekämpfen von unerwünschten Mikroorganismen.

BEST AVAILABLE COPY



— vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

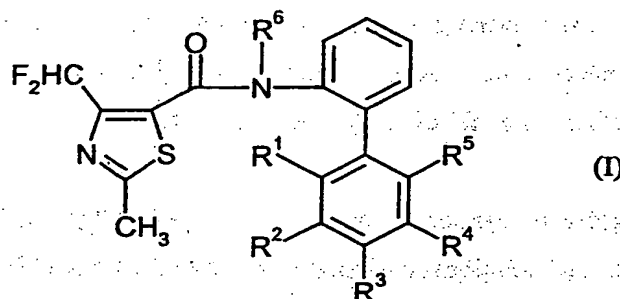
Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Thiazolylbiphenylamide

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Thiazolylbiphenylamide, mehrere Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung zur Bekämpfung von schädlichen Mikroorganismen im Pflanzenschutz und Materialschutz.

Es ist bereits bekannt geworden, dass zahlreiche Carboxanilide fungizide Eigenschaften besitzen (vergleiche z.B. EP 0 545 099). Die Wirksamkeit der dort beschriebenen Stoffe ist gut, lässt aber bei niedrigen Aufwandmengen in manchen Fällen zu wünschen übrig.

Es wurden nun neue Thiazolylbiphenylamide der Formel (I)



in welcher

$R^1, R^2, R^3, R^4$  und  $R^5$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen stehen,

$R^1$  und  $R^2$  oder  $R^2$  und  $R^3$  außerdem gemeinsam für gegebenenfalls durch Halogen oder  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl substituiertes Alkenylen stehen,

$R^6$  für  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;  $-COR^7$ ,  $-CONR^8R^9$  oder  $-CH_2NR^{10}R^{11}$  steht,

R<sup>7</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkoxy, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl steht,

5

R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

10

R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>12</sup> enthalten kann,

15

R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

20

R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>12</sup> enthalten kann,

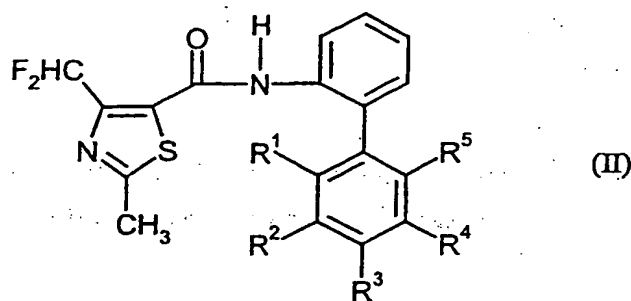
25

R<sup>12</sup> für Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl steht.

Weiterhin wurde gefunden, dass man Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) erhält, indem man

30

(A) Thiazolylbiphenylamide der Formel (II)



in welcher

$R^1, R^2, R^3, R^4$  und  $R^5$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit einem Halogenid der Formel (III)



in welcher

$R^6$  die oben angegebenen Bedeutungen hat und

$X$  für Chlor, Brom oder Iod steht,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

Schließlich wurde gefunden, dass die neuen Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) eine wesentlich bessere fungizide Wirksamkeit als die konstitutionell ähnlichsten, vorbekannten Wirkstoffe gleicher Wirkungsrichtung.

Die erfindungsgemäßen Thiazolylbiphenylamide sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevorzugte Definitionen der in den vorstehenden und nachstehenden Formeln genannten Substituenten sind im Folgenden angegeben. Sie gelten für die Vor- und Zwischenprodukte gleichermaßen.

$R^1, R^2, R^3, R^4$  und  $R^5$  stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder iso-Propylthio, Cyclopropyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy,

Difluorchlormethoxy, Trifluorethoxy, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio oder Trifluormethylthio.

5  $R^1$  und  $R^2$  oder  $R^2$  und  $R^3$  stehen außerdem gemeinsam bevorzugt für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituiertes Butadien-diyl.

10  $R^6$  steht bevorzugt für  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_3$ -alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;  $-COR^7$ ,  $-CONR^8R^9$  oder  $-CH_2NR^{10}R^{11}$ .

15  $R^7$  steht bevorzugt für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy, Halogen- $C_1$ - $C_3$ -alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl.

20  $R^8$  und  $R^9$  stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl, Halogen- $C_1$ - $C_3$ -alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.

25  $R^8$  und  $R^9$  bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder  $NR^{12}$  enthalten kann.

30  $R^{10}$  und  $R^{11}$  stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.

35  $R^{10}$  und  $R^{11}$  bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8

Ringatomen, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>12</sup> enthalten kann.

R<sup>12</sup> steht bevorzugt für Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl.

5

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Methoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluormethylthio oder Trifluormethylthio.

10

R<sup>6</sup> steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethylsulfanyl, Difluorchlormethylsulfanyl, Trifluormethylsulfanyl, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl, -COR<sup>7</sup>, -CONR<sup>8</sup>R<sup>9</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>10</sup>R<sup>11</sup>.

15

R<sup>7</sup> steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, tert-Butoxy, Cyclopropyl; Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl.

20

R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl.

25

R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch R<sup>12</sup> substituiert sein kann.

30

R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl,

35

Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl.

5  $R^{10}$  und  $R^{11}$  bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch  $R^{12}$  substituiert sein kann.

10  $R^{12}$  steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl.

Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher jeweils vier der Reste  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  für Wasserstoff stehen.

15 Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^4$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und  $R^3$  die oben angegebenen Bedeutungen hat.

20 Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^4$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und  $R^3$  für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio steht.

25 Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher  $R^2$ ,  $R^4$  und  $R^5$  für jeweils Wasserstoff stehen und  $R^1$  und  $R^3$  unabhängig voneinander die oben angegebenen Bedeutungen haben.

30 Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher  $R^2$ ,  $R^4$  und  $R^5$  für jeweils Wasserstoff stehen und  $R^1$  und  $R^3$  unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Trifluormethyl stehen.

35 Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher  $R^1$ ,  $R^4$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und



$R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher

$R^1$ ,  $R^4$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und

5  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Trifluormethyl stehen.

Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher

$R^1$ ,  $R^3$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und

10  $R^2$  und  $R^4$  unabhängig voneinander die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher

$R^1$ ,  $R^3$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und

15  $R^2$  und  $R^4$  unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Trifluormethyl stehen.

Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher

$R^6$  für  $-\text{COR}^7$  steht und  $R^7$  für 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl steht.

20 Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher

$R^6$  für  $-\text{COR}^7$  steht und  $R^7$  für Methyl, Ethyl, Cyclopropyl oder Trifluormethyl, insbesondere Methyl steht.

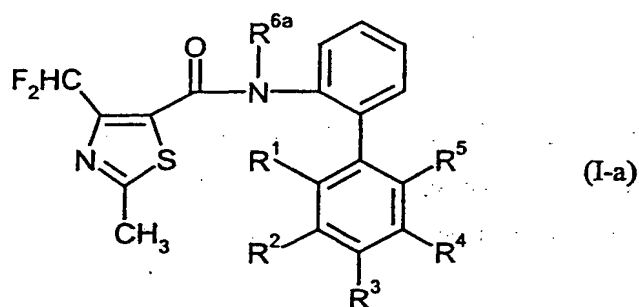
Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher

25  $R^6$  für  $-\text{CHO}$  steht.

Ganz besonders bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I), in welcher

30  $R^6$  für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methylsulfinyl, Methylsulfonyl, Methoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl, insbesondere Methyl, iso-Propyl oder Cyclopropyl steht.

Eine bevorzugte Gruppe sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I-a)



in welcher

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen stehen,

$R^1$  und  $R^2$  oder  $R^2$  und  $R^3$  außerdem gemeinsam für gegebenenfalls durch Halogen oder  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl substituiertes Alkenylen stehen,

$R^{6a}$  für  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;  $-COR^{7a}$ ,  $-CONR^8R^9$  oder  $-CH_2NR^{10}R^{11}$  steht,

$R^{7a}$  für Wasserstoff,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl steht,

$R^8$  und  $R^9$  unabhängig voneinander für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_8$ -Halogenalkyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

$R^8$  und  $R^9$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden,

wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>12</sup> enthalten kann,

5 R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

10 R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>12</sup> enthalten kann,

R<sup>12</sup> für Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl steht.

15 Die erfindungsgemäßen Thiazolylbiphenylamide sind durch die Formel (I-a) allgemein definiert. Bevorzugte Definitionen der in dieser Formel genannten Substituenten sind im Folgenden angegeben.

20 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup>, R<sup>8</sup>, R<sup>9</sup>, R<sup>10</sup>, R<sup>11</sup> und R<sup>12</sup> stehen unabhängig voneinander bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

25

R<sup>6a</sup> steht bevorzugt für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR<sup>7a</sup>, -CONR<sup>8</sup>R<sup>9</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>10</sup>R<sup>11</sup>.

30

R<sup>7a</sup> steht bevorzugt für Wasserstoff, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl.

$R^{6a}$  steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethylsulfanyl, Difluorchlormethylsulfanyl, Trifluormethylsulfanyl, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl;  $-COR^7$ ,  $-CONR^8R^9$  oder  $-CH_2NR^{10}R^{11}$ .

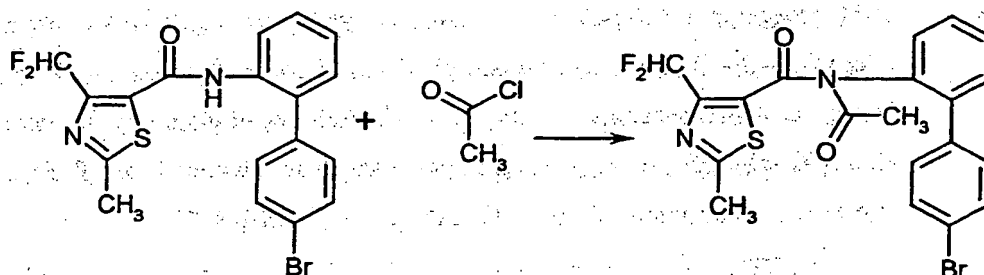
$R^7$  steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Cyclopropyl oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl.

Weiterhin bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I-a), in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen.

Weiterhin bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I-a), in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  die oben angegebenen Bedeutungen haben, aber nicht für Halogen stehen.

Weiterhin bevorzugt sind Thiazolylbiphenylamide der Formel (I-a), in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen und außerdem unabhängig voneinander nicht für Halogen stehen.

Verwendet man *N*-(4'-Brom-1,1'-biphenyl-2-yl)-4-(difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-5-carboxamid und Acetylchlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) durch folgende Reaktionsgleichung veranschaulicht werden:

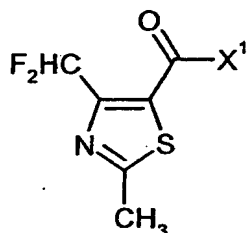


Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) als Ausgangsstoffe benötigten Thiazolylbiphenylamide sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel stehen  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders

bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt angegeben wurden.

- 5 Thiazolylbiphenylamide der Formel (II) sind in DE-A 102 04 391 beschrieben. Sie lassen sich herstellen, indem man

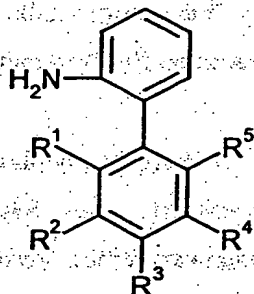
- a) Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenide der Formel (IV)



(IV)

- 10 in welcher  
X<sup>1</sup> für Halogen steht,

mit Anilinderivaten der Formel (V)

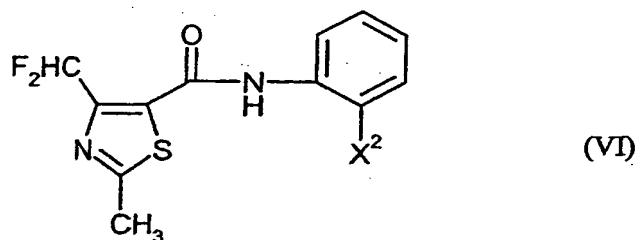


(V)

- 15 in welcher  
R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels (z.B. Triethylamin) und  
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (z.B. Tetrahydrofuran)  
20 umsetzt, oder

b) Difluormethylthiazolylcarboxhalogenanilide der Formel (VI)

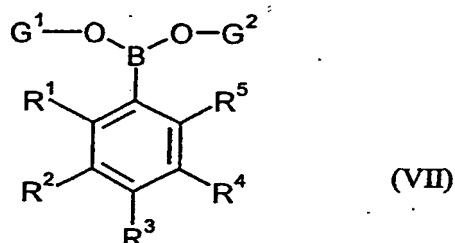


in welcher

X<sup>2</sup> für Brom oder Iod steht,

5

mit Boronsäurederivaten der Formel (VII)



in welcher

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

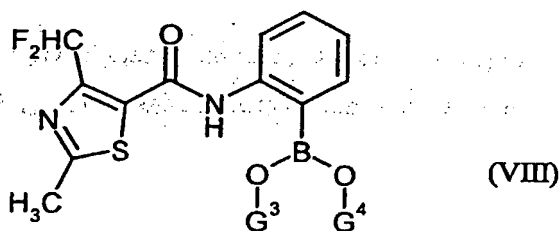
G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

10

in Gegenwart eines Katalysators (z.B. 1,1'-Bis(diphenylphosphino)ferrocenpalladium(II)chlorid), gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels (z.B. Kaliumacetat) und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (z.B. Dimethylsulfoxid) umgesetzt, oder

15

c) Thiazolylbiphenylamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VIII)

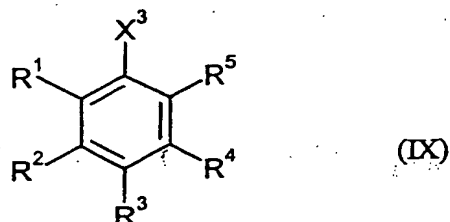


in welcher

G<sup>3</sup> und G<sup>4</sup> jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

20

mit Halogenbenzolderivaten der Formel (IX)



in welcher

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

X<sup>3</sup> für Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonyloxy steht,

in Gegenwart eines Katalysators (z.B. 1,1'-Bis(diphenylphosphino)ferrocenpalladium(II)chlorid), gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels (z.B. Kaliumacetat) und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (z.B. Dimethylsulfoxid) umgesetzt.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenide sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) steht X<sup>1</sup> bevorzugt für Chlor.

Die Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenide der Formel (IV) sind bekannt und/ oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vergleiche z.B. EP 0 276 177).

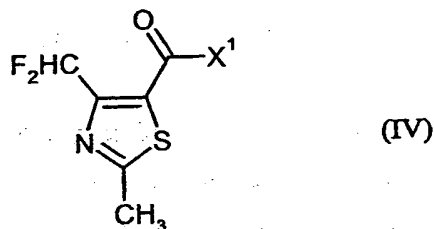
Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) als Ausgangsstoffe benötigten Aniline sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel (V) stehen R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Anilin-Derivate der Formel (V) sind bekannt und/oder lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (vgl. z.B. Bull. Korean Chem. Soc. 2000, 21, 165-166; Chem. Pharm. Bull. 1992, 40, 240-4; JP 09132567).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylthiazolylcarboxhalogenanilide sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel (VI) steht  $X^2$  bevorzugt für Brom oder Iod.

- 5 Die Difluormethylthiazolylcarboxhalogenanilide der Formel (VI) lassen sich herstellen, indem man

d) Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenide der Formel (IV)



- 10 in welcher  
 $X^1$  für Halogen steht,  
mit 2-Bromanilin oder 2-Iodanilin umgesetzt.

- Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens d) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenide der Formel (IV) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren a) beschrieben worden.

- Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens d) als Ausgangsstoffe benötigten Stoffe 2-Bromanilin oder 2-Iodanilin sind bekannte Syntheschemikalien.

- 20 Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) als Ausgangsstoffe benötigten Boronsäurederivate sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In dieser Formel (VII) stehen  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.  $G^1$  und  $G^2$  stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

- 30 Boronsäurederivate der Formel (VII) sind bekannte Syntheschemikalien. Sie können auch unmittelbar vor der Reaktion direkt aus Halogenbenzolderivaten und Boronsäureestern her-

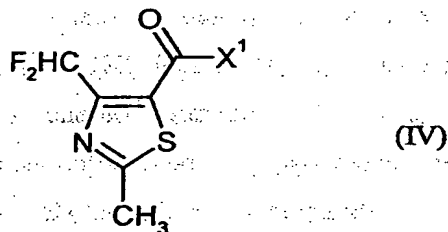


gestellt und ohne Aufarbeitung weiter umgesetzt werden (siehe auch die Herstellungsbeispiele).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens c) als Ausgangsstoffe benötigten  
 5 Thiazolylbiphenylamid-Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In dieser Formel (VIII) stehen  $G^3$  und  $G^4$  bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Thiazolylbiphenylamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VIII) lassen sich herstellen,  
 10 indem man

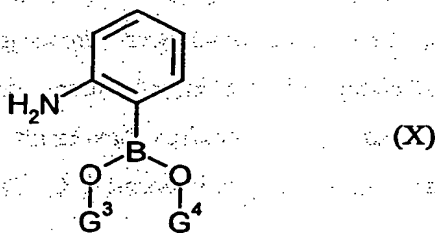
e) Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenide der Formel (IV)



in welcher

15  $X^1$  für Halogen steht,

mit Anilinboronsäurederivaten der Formel (X)



in welcher

20  $G^3$  und  $G^4$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens e) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenide der Formel (IV) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren a) beschrieben worden.

5 Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens e) als Ausgangsstoffe benötigten Anilinboronsäurederivate sind durch die Formel (X) allgemein definiert. In dieser Formel (X) stehen  $G^3$  und  $G^4$  bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

10 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens e) als Ausgangsstoffe benötigten Anilinboronsäurederivate der Formel (X) sind bekannte Syntheschemikalien.

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens c) als Ausgangsstoffe benötigten Halogenbenzolderivate sind durch die Formel (IX) allgemein definiert. In dieser  
15 Formel (IX) stehen  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.  $X^3$  steht bevorzugt für Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonyloxy.

20 Die außerdem zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) als Ausgangsstoffe benötigten Halogenide sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel steht  $R^6$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen  
25 Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden. X steht bevorzugt für Chlor oder Brom.

Halogenide der Formel (III) sind bekannte Syntheschemikalien.

30 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie  
35

Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol oder Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid.

5

Das erfindungsgemäße Verfahren (A) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Caesiumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

10

15

20

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Thiazolylbiphenylamids der Formel (II) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an Halogenid der Formel (III) ein.

25

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren a), d) und e) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrol-ether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol oder Amide, wie

30

N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid.

Die erfindungsgemäßen Verfahren a), d) und e) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines  
5 geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkali-  
metallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbona-  
te, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat,  
Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natrium-  
10 acetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat,  
Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Caesiumcarbonat, sowie tertiäre  
Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-  
Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylami-  
nopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicyc-  
15 loundecen (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren  
a), d) und e) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei  
Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) zur Herstellung der Verbindungen  
der Formel (II) setzt man pro Mol des Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenides der  
Formel (IV) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an Anilinderivat der  
Formel (V) ein.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens d) zur Herstellung der Verbindungen  
der Formel (V) setzt man pro Mol des Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenides der  
Formel (IV) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an 2-Bromanilin  
oder 2-Iodanilin ein.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens e) zur Herstellung der Verbindungen  
der Formel (VIII) setzt man pro Mol des Difluormethylthiazolylcarbonsäurehalogenides der  
Formel (IV) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an  
Anilinboronsäurederivat der Formel (X) ein.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren b) und c) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrol-  
ether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin;  
5 Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder iso-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester;  
10 Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; Sulfone, wie Sulfolan; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, n-, iso-, sec- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

15 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahrens b) und c) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

Die erfindungsgemäßen Verfahren b) und c) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder  
20 organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, fluoride, phosphate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kalium-  
25 hydroxid, Natriumacetat, Natriumphosphat, Kaliumphosphat, Kaliumfluorid, Cäsiumfluorid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Cäsiumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).  
30

Die erfindungsgemäßen Verfahren b) und c) werden in Gegenwart eines Katalysators, wie beispielsweise eines Palladiumsalzes oder -komplexes, durchgeführt. Hierzu kommen vorzugsweise Palladiumchlorid, Palladiumacetat, Tetrakis-(triphenylphosphin)-Palladium,

Bis-(triphenylphosphin)-Palladiumdichlorid oder (1,1'-Bis(diphenylphosphino)ferrocen-palladium(II)chlorid) infrage.

5 Es kann auch ein Palladiumkomplex in der Reaktionsmischung erzeugt werden, wenn man ein Palladiumsalz und ein Komplexlignand, wie beispielsweise Triethylphosphan, Tri-tert-butylphosphan, Tricyclohexylphosphan, 2-(Dicyclohexylphosphan)-biphenyl, 2-(Di-tert-butylphosphan)-biphenyl, 2-(Dicyclohexylphosphan)-2'-(N,N-dimethylamino)-biphenyl, Triphenylphosphan, Tris-(o-Tolyl)-phosphan, Natrium-3-(diphenylphosphino)benzolsulfonat, Tris-2-(Methoxyphenyl)-phosphan, 2,2'-Bis-(diphenylphosphan)-1,1'-binaphthyl, 1,4-Bis-

10 (diphenylphosphan)-butan, 1,2-Bis-(diphenylphosphan)-ethan, 1,4-Bis-(dicyclohexylphosphan)-butan, 1,2-Bis-(dicyclohexylphosphan)-ethan, 2-(Dicyclohexylphosphan)-2'-(N,N-dimethylamino)-biphenyl, Bis(diphenylphosphino)ferrocen oder Tris-(2,4-tert-butylphenyl)-phosphit getrennt zur Reaktion zugibt.

15 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (II) setzt man pro Mol des Difluormethylthiazolylcarboxhalogenanilide der Formel (VI) im allgemeinen 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 2 bis 8 Mol an Boronsäurederivat der Formel (VII) ein.

20 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens c) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (II) setzt man pro Mol des Thiazolylbiphenylamid-Boronsäure-Derivates der Formel (VIII) im allgemeinen 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 2 bis 8 Mol an Halogenbenzolderivat der Formel (IX) ein.

25 Die erfindungsgemäßen Verfahren (A), a), b), c) und d) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - zu arbeiten.

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur

30 Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

Fungizide lassen sich Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und

35 Deuteromycetes einsetzen.

Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.

- Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen  
5 Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

- Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise *Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*;
- Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;
- Erwinia-Arten, wie beispielsweise *Erwinia amylovora*;
- 10 Pythium-Arten, wie beispielsweise *Pythium ultimum*;
- Phytophthora-Arten, wie beispielsweise *Phytophthora infestans*;
- Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudoperonospora humuli* oder *Pseudoperonospora cubensis*;
- Plasmopara-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara viticola*;
- 15 Bremia-Arten, wie beispielsweise *Bremia lactucae*;
- Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi* oder *P. brassicae*;
- Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;
- Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;
- Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;
- 20 Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;
- Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*  
(Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);
- Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*  
(Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);
- 25 Uromyces-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;
- Puccinia-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;
- Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise *Sclerotinia sclerotiorum*;
- Tilletia-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;
- Ustilago-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;
- 30 Pellicularia-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;
- Pyricularia-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;
- Fusarium-Arten, wie beispielsweise *Fusarium culmorum*;
- Botrytis-Arten, wie beispielsweise *Botrytis cinerea*;
- Septoria-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;
- 35 Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;

Cercospora-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;

*Alternaria*-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;

*Pseudocercospora*-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*.

- 5 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen auch eine starke stärkende Wirkung in Pflanzen auf. Sie eignen sich daher zur Mobilisierung pflanzeigener Abwehrkräfte gegen Befall durch unerwünschte Mikroorganismen.

- 10 Unter pflanzenstärkenden (resistenzinduzierenden) Stoffen sind im vorliegenden Zusammenhang solche Substanzen zu verstehen, die in der Lage sind, das Abwehrsystem von Pflanzen so zu stimulieren, dass die behandelten Pflanzen bei nachfolgender Inokulation mit unerwünschten Mikroorganismen weitgehende Resistenz gegen diese Mikroorganismen entfalten.

- 15 Unter unerwünschten Mikroorganismen sind im vorliegenden Fall phytopathogene Pilze, Bakterien und Viren zu verstehen. Die erfindungsgemäßen Stoffe können also eingesetzt werden, um Pflanzen innerhalb eines gewissen Zeitraumes nach der Behandlung gegen den Befall durch die genannten Schaderreger zu schützen. Der Zeitraum, innerhalb dessen Schutz herbeigeführt wird, erstreckt sich im allgemeinen von 1 bis 10 Tage, vorzugsweise 1  
20 bis 7 Tage nach der Behandlung der Pflanzen mit den Wirkstoffen.

- Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

- 25 Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau einsetzen, wie beispielsweise gegen *Venturia*-, *Botrytis*-, *Sclerotinia*-, *Rhizoctonia*-, *Uncinula*-, *Sphaerotheca*-, *Podosphaera*-, *Alternaria*- und *Colletotrichum*-Arten. Mit gutem Erfolg werden auch Reiskrankheiten, wie *Pyricularia*- und *Pellicularia*-Arten, bekämpft.
- 30

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.



Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können gegebenenfalls in bestimmten Konzentrationen und Aufwandmengen auch als Herbizide, zur Beeinflussung des Pflanzenwachstums, sowie zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- und Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaeren oder nicht schützbaeren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stängel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen, Injizieren und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroorganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von

Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Materialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungs-  
5 flüssigkeiten genannt, besonders bevorzugt Holz.

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe  
10 gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

Alternaria, wie *Alternaria tenuis*,  
15 Aspergillus, wie *Aspergillus niger*,  
Chaetomium, wie *Chaetomium globosum*,  
Coniophora, wie *Coniophora puetana*,  
Lentinus, wie *Lentinus tigrinus*,  
Penicillium, wie *Penicillium glaucum*,  
20 Polyporus, wie *Polyporus versicolor*,  
Aureobasidium, wie *Aureobasidium pullulans*,  
Sclerophoma, wie *Sclerophoma pityophila*,  
Trichoderma, wie *Trichoderma viride*,  
Escherichia, wie *Escherichia coli*,  
25 Pseudomonas, wie *Pseudomonas aeruginosa*,  
Staphylococcus, wie *Staphylococcus aureus*.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/ oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen,  
30 Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der  
35 Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüs-

sigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum-  
erzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch  
organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungs-  
mittel kommen im wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkyl-  
naphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie  
Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie  
Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie  
deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder  
Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid,  
sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche  
Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig  
sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stick-  
stoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. natürliche Gesteins-  
mehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Dia-  
tomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid  
und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und  
fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie syn-  
thetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus orga-  
nischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als  
Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und an-  
ionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether,  
z.B. Alkylarylpolyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhy-  
drolysate. Als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methyl-  
cellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und  
synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummi-  
arabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline  
und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und  
vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau  
und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und

Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

5 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

10 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen infrage:

15 **Fungizide:**

2-Phenylphenol; 8-Hydroxyquinoline sulfate; Acibenzolar-S-methyl; Aldimorph; Amido-  
flumet; Ampropylfos; Ampropylfos-potassium; Andoprim; Anilazine; Azaconazole;  
Azoxystrobin;

20 Benalaxyl; Benodanil; Benomyl; Benthiavalicarb-isopropyl; Benzamacril; Benzamacril-  
isobutyl; Bilanafos; Binapacryl; Biphenyl; Bitertanol; Blasticidin-S; Bromuconazole;  
Bupirimate; Buthiobate; Butylamine;

25 Calcium polysulfide; Capsimycin; Captafol; Captan; Carbendazim; Carboxin; Carpropamid;  
Carvone; Chinomethionat; Chlobenthiazole; Chlorfenazole; Chloroneb; Chlorothalonil;  
Chlozolate; Clozylacon; Cyazofamid; Cyflufenamid; Cymoxanil; Cyproconazole;  
Cyprodinil; Cyprofuram;

Dagger G; Debacarb; Dichlofluanid; Dichlone; Dichlorophen; Diclocymet; Diclomezine;  
Dicloran; Diethofencarb; Difenconazole; Diflumentorim; Dimethirimol; Dimethomorph;  
Dimoxystrobin; Diniconazole; Diniconazole-M; Dinocap; Diphenylamine; Dipyrithione;  
Ditalimfos; Dithianon; Dodine; Drazoxolon;

30 Edifenphos; Epoxiconazole; Ethaboxam; Ethirimol; Etridiazole;

Famoxadone; Fenamidone; Fenapanil; Fenarimol; Fenbuconazole; Fenfuram; Fenhexamid;  
Fenitropan; Fenoxanil; Fenpiclonil; Fenpropidin; Fenpropimorph; Ferbam; Fluazinam;  
Flubenzimine; Fludioxonil; Flumetover; Flumorph; Fluoromide; Fluoxastrobin;  
Fluquinconazole; Flurprimidol; Flusilazole; Flusulfamide; Flutolanil; Flutriafol; Folpet;

- Fosetyl-Al; Fosetyl-sodium; Fuberidazole; Furalaxyl; Furametpyr; Furcarbanil;  
Furmecyclox;  
Guazatine; Hexachlorobenzene; Hexaconazole; Hymexazol;  
Imazalil; Imibenconazole; Iminoctadine triacetate; Iminoctadine tris(albesil; Iodocarb;  
5 Ipconazole; Iprobenfos; Iprodione; Iprovalicarb; Irumamycin; Isoprothiolane; Isovaledione;  
Kasugamycin; Kresoxim-methyl;  
Mancozeb; Maneb; Meferimzone; Mepanipyrim; Mepronil; Metalaxyl; Metalaxyl-M;  
Metconazole; Methasulfocarb; Methfuroxam; Metiram; Metominostrobin; Metsulfovax;  
Mildiomycin; Myclobutanil; Myclozolin;  
10 Natamycin; Nicobifen; Nitrothal-isopropyl; Noviflumuron; Nuarimol;  
Ofurace; Orysastrobil; Oxadixyl; Oxolinic acid; Oxpoconazole; Oxycarboxin; Oxyfenthin;  
Paclobutrazol; Pefurazoate; Penconazole; Pencycuron; Phosdiphen; Phthalide;  
Picoxystrobin; Piperalin; Polyoxins; Polyoxorim; Probenazole; Prochloraz; Procymidone;  
Propamocarb; Propanosine-sodium; Propiconazole; Propineb; Proquinazid; Prothioconazole;  
15 Pyraclostrobin; Pyrazophos; Pyrifenoxy; Pyrimethanil; Pyroquilon; Pyroxyfur; Pyrrolnitrine;  
Quinconazole; Quinoxifen; Quintozene; Simeconazole; Spiroxamine; Sulfur;  
Tebuconazole; Tecloftalam; Tecnazene; Tetcyclacis; Tetraconazole; Thiabendazole;  
Thicyofen; Thifluzamide; Thiophanate-methyl; Thiram; Tioxymid; Tolclofos-methyl;  
Tolylfluanid; Triadimefon; Triadimenol; Triazbutil; Triazoxide; Tricyclamide; Tricyclazole;  
20 Tridemorph; Trifloxystrobin; Triflumizole; Triforine; Triticonazole;  
Uniconazole; Validamycin A; Vinclozolin; Zineb; Ziram; Zoxamide;  
(2S)-N-[2-[4-[[3-(4-Chlorphenyl)-2-propinyl]oxy]-3-methoxyphenyl]ethyl]-3-methyl-2-[(methyl-  
sulfonyl)amino]-butanamid; 1-(1-Naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion; 2,3,5,6-Tetrachlor-4-  
(methylsulfonyl)-pyridin; 2-Amino-4-methyl-N-phenyl-5-thiazolcarboxamid; 2-Chlor-N-(2,3-  
25 dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid; 3,4,5-Trichlor-2,6-  
pyridindicarbonitril; Actinovate; cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol;  
Methyl-1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat;  
Monokaliumcarbonat; N-(6-Methoxy-3-pyridinyl)-cyclopropanocarboxamid; N-Butyl-8-(1,1-  
dimethylethyl)-1-oxaspiro[4.5]decan-3-amin; Natriumtetrathiocarbonat;  
30 sowie Kupfersalze und -zubereitungen, wie Bordeaux mixture; Copper hydroxide; Copper  
naphthenate; Copper oxychloride; Copper sulfate; Cufraneb; Cuprous oxide; Mancopper;  
Oxine-copper.

**Bakterizide:**

- 35 Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Oc-

thilidon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

**Insektizide / Akarizide / Nematizide:**

- 5 Abamectin, ABG-9008, Acephate, Acequinocyl, Acetamiprid, Acetoprole, Acrinathrin, AKD-1022, AKD-3059, AKD-3088, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Allethrin, Allethrin 1R-isomers, Alpha-Cypermethrin (Alphamethrin), Amidoflumet, Aminocarb, Amitraz, Avermectin, AZ-60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos-methyl, Azinphos-ethyl, Azocyclotin,
- 10 *Bacillus popilliae*, *Bacillus sphaericus*, *Bacillus subtilis*, *Bacillus thuringiensis*, *Bacillus thuringiensis* strain EG-2348, *Bacillus thuringiensis* strain GC-91, *Bacillus thuringiensis* strain NCTC-11821, Baculoviren, *Beauveria bassiana*, *Beauveria tenella*, Bendiocarb, Benfurcarb, Bensultap, Benzoximate, Beta-Cyfluthrin, Beta-Cypermethrin, Bifenazate, Bifenthrin, Binapacryl, Bioallethrin, Bioallethrin-S-cyclopentyl-isomer, Bioethanomethrin,
- 15 Biopermethrin, Bioresmethrin, Bistrifluron, BPMC, Brofenprox, Bromophos-ethyl, Bromopropylate, Bromfenvinfos (-methyl), BTG-504, BTG-505, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butoxycarboxim, Butylpyridaben, Cadusafos, Camphechlor, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, CGA-50439, Chinomethionat, Chlordane, Chlordimeform, Chloethocarb, Chlorethoxyfos,
- 20 Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorobenzilate, Chloropicrin, Chlorproxyfen, Chlorpyrifos-methyl, Chlorpyrifos (-ethyl), Chlovaporthrin, Chromafenozide, Cis-Cypermethrin, Cis-Resmethrin, Cis-Permethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Clothianidin, Clothiazoben, Codlemone, Coumaphos, Cyanofenphos, Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin, *Cydia pomonella*, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyphenothrin (1R-trans-isomer), Cyromazine,
- 25 DDT, Deltamethrin, Demeton-S-methyl, Demeton-S-methylsulphon, Diafenthiuron, Dialifos, Diazinon, Dichlofenthion, Dichlorvos, Dicofol, Dicrotophos, Dicyclanil, Diflubenzuron, Dimethoate, Dimethylvinphos, Dinobuton, Dinocap, Dinotefuran, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn, DOWCO-439,
- 30 Eflusilanate, Enamectin, Enamectin-benzoate, Empenthrin (1R-isomer), Endosulfan, *Entomophthora* spp., EPN, Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethiprole, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimfos, Famphur, Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenfluthrin, Fenitrothion, Fenobucarb, Fenothiocarb, Fenoxacrim, Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fensulfothion, Fenthion, Fentrifanil, Fenvalerate, Fipronil, Flonicamid, Flu-
- 35

- acrypyrim, Fluazuron, Flubenzimine, Flubrocyclothrinate, Flucyclohexuron, Flucythrinate, Flufenimer, Flufenoxuron, Flufenprox, Flumethrin, Flupyrzofos, Flutenzin (Flufenzine), Fluvallinate, Fonofos, Formetanate, Formothion, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox (Fluproxyfen), Furathiocarb,
- 5     Gamma-HCH, Gossypure, Grandlure, Granuloseviren, Halfenprox, Halofenozide, HCH, HCN-801, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydramethylnone, Hydroprene, IKA-2002, Imidacloprid, Imiprothrin, Indoxacarb, Iodofenphos, Iprobenfos, Isazofos, Isofenphos, Isoprocarb, Isoxathion, Ivermectin,
- 10    Japonilure, Kadethrin, Kempolyederviren, Kinoprene, Lambda-Cyhalothrin, Lindane, Lufenuron, Malathion, Mecarbam, Mesulfenfos, Metaldehyd, Metam-sodium, Methacrifos, Methamidophos, Metharhizium anisopliae, Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoprene, Methoxychlor, Methoxyfenozide, Metolcarb, Metoxadiazone,
- 15    Mevinphos, Milbemectin, Milbemycin, MKI-245, MON-45700, Monocrotophos, Moxidectin, MTI-800, Naled, NC-104, NC-170, NC-184, NC-194, NC-196, Niclosamide, Nicotine, Nitenpyram, Nithiazine, NNI-0001, NNI-0101, NNI-0250, NNI-9768, Novaluron, Noviflumuron, OK-5101, OK-5201, OK-9601, OK-9602, OK-9701, OK-9802, Omethoate, Oxamyl, Oxydemeton-methyl,
- 20    Paecilomyces fumosoroseus, Parathion-methyl, Parathion (-ethyl), Permethrin (cis-, trans-), Petroleum, PH-6045, Phenothrin (1R-trans isomer), Phenthoate, Phorate, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phosphocarb, Phoxim, Piperonyl butoxide, Pirimicarb, Pirimiphos-methyl, Pirimiphos-ethyl, Prallethrin, Profenofos, Promecarb, Propaphos, Propargite, Propetamphos, Propoxur, Prothiofos, Prothoate, Protrifenbute, Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridalyl, Pyridaphenthion, Pyridathion, Pyrimidifen, Pyriproxyfen,
- 25    Quinalphos, Resmethrin, RH-5849, Ribavirin, RU-12457, RU-15525, S-421, S-1833, Salithion, Sebufos, SI-0009, Silafluofen, Spinosad, Spirodiclofen, Spiromesifen, Sulfluramid, Sulfotep, Sulprofos, SZI-121,
- 30    Tau-Fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimfos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Temvinphos, Terbam, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Tetradifon, Tetramethrin, Tetramethrin (1R-isomer), Tetrasul, Theta-Cypermethrin, Thiacloprid, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thiometon, Thio-
- 35    sultap-sodium, Thuringiensin, Tolfenpyrad, Traloccythrin, Tralomethrin, Transfluthrin, Tri-

arathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,

Vamidothion, Vanilprole, Verbutin, Verticillium lecanii,

WL-108477, WL-40027, YI-5201, YI-5301, YI-5302, XMC, Xylylcarb, ZA-3274, Zeta-

5 Cypermethrin, Zolaprofos, ZXI-8901,

die Verbindung 3-Methyl-phenyl-propylcarbammat (Tsumacide Z),

die Verbindung 3-(5-Chlor-3-pyridinyl)-8-(2,2,2-trifluorethyl)-8-azabicyclo[3.2.1]octan-3-carbonitril (CAS-Reg.-Nr. 185982-80-3) und das entsprechende 3-endo-Isomere (CAS-Reg.-Nr. 185984-60-5) (vgl. WO 96/37494, WO 98/25923),

10 sowie Präparate, welche insektizid wirksame Pflanzenextrakte, Nematoden, Pilze oder Viren enthalten.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren, Safener bzw. Semiochemicals ist möglich.

15 Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimykotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sprosspilze, Schimmel und diphasische Pilze (z.B. gegen Candida-Spezies wie Candida albicans, Candida glabrata) sowie Epidermo-

20 phyton floccosum, Aspergillus-Spezies wie Aspergillus niger und Aspergillus fumigatus, Trichophyton-Spezies wie Trichophyton mentagrophytes, Microsporon-Spezies wie Microsporon canis und audouinii. Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfassbaren mykotischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

25 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-

30 Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der

35 Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen



zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1.000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im  
5 allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5.000 g/ha.

Die zum Schutz technischer Materialien verwendeten Mittel enthalten die Wirkstoffe im allgemeinen in einer Menge von 1 bis 95 %, bevorzugt von 10 bis 75 %.

10 Die Anwendungskonzentrationen der erfindungsgemäßen Wirkstoffe richten sich nach der Art und dem Vorkommen der zu bekämpfenden Mikroorganismen sowie nach der Zusammensetzung des zu schützenden Materials. Die optimale Einsatzmenge kann durch Testreihen ermittelt werden. Im allgemeinen liegen die Anwendungskonzentrationen im Bereich von 0,001 bis 5 Gew.-%, vorzugsweise von 0,05 bis 1,0 Gew.-% bezogen auf das zu  
15 schützende Material.

Die Wirksamkeit und das Wirkungsspektrum der erfindungsgemäß im Materialschutz zu verwendenden Wirkstoffe bzw. der daraus herstellbaren Mittel, Konzentrate oder ganz allgemein Formulierungen kann erhöht werden, wenn gegebenenfalls weitere antimikrobiell  
20 wirksame Verbindungen, Fungizide, Bakterizide, Herbizide, Insektizide oder andere Wirkstoffe zur Vergrößerung des Wirkungsspektrums oder Erzielung besonderer Effekte wie z.B. dem zusätzlichen Schutz vor Insekten zugesetzt werden. Diese Mischungen können ein breiteres Wirkungsspektrum besitzen als die erfindungsgemäßen Verbindungen.

25 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können ferner beim Einsatz als Insektizide in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit Synergisten vorliegen. Synergisten sind Verbindungen, durch die die Wirkung der Wirkstoffe gesteigert wird, ohne dass der zugesetzte Synergist selbst aktiv wirksam sein muss.

30 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können ferner beim Einsatz als Insektizide in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischungen mit Hemmstoffen vorliegen, die einen Abbau des Wirkstoffes nach Anwendung in der Umgebung der Pflanze, auf der Oberfläche von  
35 Pflanzenteilen oder in pflanzlichen Geweben vermindern.

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0000001 bis zu 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gew.-% liegen.

5

Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepassten üblichen Weise.

10

Bei der Anwendung gegen Hygiene- und Vorratsschädlinge zeichnet sich der Wirkstoff durch eine hervorragende Residualwirkung auf Holz und Ton sowie durch eine gute Alkalistabilität auf gekalkten Unterlagen aus.

15

Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild vorkommende oder durch konventionelle biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden gegebenenfalls in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetically Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff „Teile“ bzw. „Teile von Pflanzen“ oder „Pflanzenteile“ wurde oben erläutert.

20

25

Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit neuen Eigenschaften („Traits“), die sowohl durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese oder durch rekombinante DNA-Techniken gezüchtet worden sind. Dies können Sorten, Rassen, Bio- und Genotypen sein.

30

35

Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch überadditive („synergistische“) Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe und Mittel, besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit

und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu erwartenden Effekte hinausgehen.

Zu den bevorzugten erfindungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften („Traits“) verleiht. Beispiele für solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders hervorgehobene Beispiele für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften („Traits“) werden besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten, Spinnentiere, Nematoden und Schnecken durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das genetische Material aus *Bacillus thuringiensis* (z.B. durch die Gene CryIA(a), CryIA(b), CryIA(c), CryIIA, CryIIIA, CryIIIB2, Cry9c, Cry2Ab, Cry3Bb und CryIF sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im folgenden „Bt Pflanzen“). Als Eigenschaften („Traits“) werden auch besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften („Traits“) werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, beispielsweise Imidazolinonen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinotricin (z.B. „PAT“-Gen). Die jeweils die gewünschten Eigenschaften („Traits“) verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für „Bt Pflanzen“ seien Maissorten, Baumwollsorten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B.

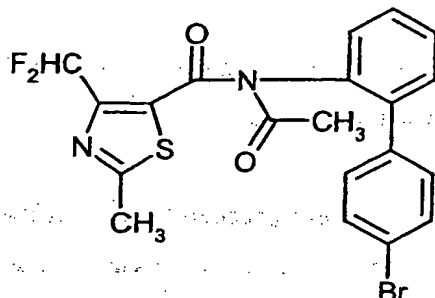
Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucotr® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden. Als Beispiele für Herbizid tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorten und Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen  
5 Glyphosate z.B. Mais, Baumwolle, Soja), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinotricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS® (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben werden. Als Herbizid resistente (konventionell auf Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese Aussagen auch für  
10 in der Zukunft entwickelte bzw. zukünftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften („Traits“).

Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der allgemeinen Formel (I) bzw. den erfindungsgemäßen Wirkstoff-  
15 mischungen behandelt werden. Die bei den Wirkstoffen bzw. Mischungen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen bzw. Mischungen.

20 Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

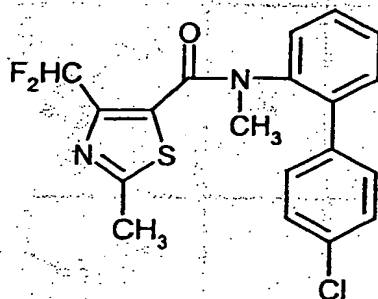
## Herstellungsbeispiele

### Beispiel 1



- 5 *N*-(4'-Brom-1,1'-biphenyl-2-yl)-4-(difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-5-carboxamid (0,3 g, 0,7 mmol) wird in Tetrahydrofuran (20 ml) vorgelegt und mit Natriumhydrid (60%ig, 34 mg, 0,85 mmol) versetzt. Nach 15 min bei Raumtemperatur wird Acetylchlorid (50  $\mu$ l, 0,7 mmol) zugeben und 5 h bei 50°C gerührt.
- 10 Zur Aufarbeitung wird mit gesättigter Natriumhydrogencarbonat-Lösung gewaschen, mit Essigsäureethylester extrahiert, mit Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum aufkonzentriert.
- Man erhält 0,31g (95 % der Theorie) *N*-Acetyl-*N*-(4'-brom-1,1'-biphenyl-2-yl)-4-(difluor-
- 15 methyl)-2-methyl-1,3-thiazol-5-carboxamid mit dem logP (pH 2,3) = 3,61.

### Beispiel 2



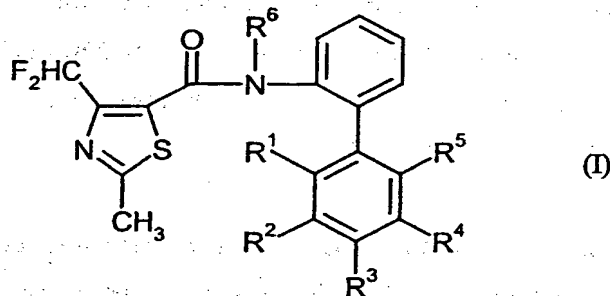
- 20 *N*-(4'-Chlor-1,1'-biphenyl-2-yl)-4-(difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-5-carboxamid (0,3 g, 0,8 mmol) wird in Tetrahydrofuran (20 ml) vorlegt und mit Natriumhydrid (60%ig, 23 mg, 1,0 mmol) versetzt. Nach 15 min bei Raumtemperatur wird Methyljodid (100  $\mu$ l, 1,6 mmol) zugegeben und für 16 h refluxiert.

Zur Aufarbeitung wird mit Natriumhydrogencarbonat-Lösung gewaschen, mit Essigsäure-ethylester extrahiert, die organische Phase über Natriumsulfat getrocknet, filtriert und eingeeengt.

- 5 Man erhält 0,25 g (80 % der Theorie) an *N*-(4'-Chlor-1,1'-biphenyl-2-yl)-4-difluormethyl)-*N*,2-dimethyl-1,3-thiazol-5-carboxamid mit dem logP (pH 2,3) = 3,34.

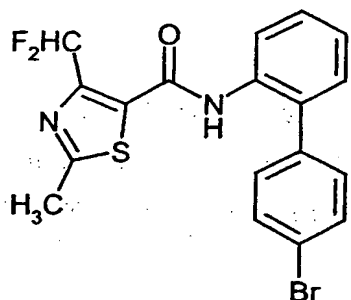
Analog den Beispielen 1 und 2, sowie entsprechend den Angaben in der allgemeinen Beschreibung des Verfahrens(A), werden die in der nachstehenden Tabelle 1 genannten

- 10 Verbindungen der Formel (I) erhalten.



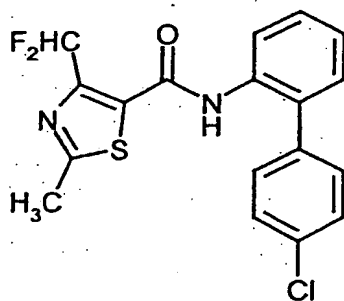
**Tabelle 1**

Bsp.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	logP
3	H	CH <sub>3</sub>	Cl	H	H		4,24
4	H	Cl	H	Cl	H		4,28
5	H	H	Cl	H	H		3,94
6	H	H	Br	H	H	-CH <sub>3</sub>	3,44
7	H	H	F	H	H	-CH <sub>3</sub>	2,99
8	H	H	F	H	H	-COCH <sub>3</sub>	3,16
9	H	H	Cl	H	H	-COCH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	3,34

Herstellung von Ausgangsstoffen der Formel (II)Beispiel (II-1)

5 23,2 g (0,09 mol) 4'-Brom-1,1'-biphenyl-2-amin und 26,0 ml (0,19 mol) Triethylamin in 1,0 l Tetrahydrofuran werden bei einer Temperatur zwischen -10 und -20 °C langsam mit einer Lösung von 21,8 g (0,10 mol) 2-Methyl-4-(difluormethyl)-1,3-thiazol-5-carbonylchlorid in 200 ml Tetrahydrofuran versetzt. Die Reaktionslösung wird für 2 h bei 0°C gerührt. Zur  
10 Aufarbeitung wird aufkonzentriert und mit Cyclohexan/Essigsäureethylester an Kieselgel chromatographiert.

Man erhält 27,8 g (70 % d. Th.) an *N*-(4'-Brom-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-methyl-4-(difluormethyl)-1,3-thiazol-5-carboxamid mit dem logP (pH2,3) = 3,34 und dem Schmelzpunkt 151°C.

Beispiel (II-2)

65,1 g (0,32 mol) 4'-Brom-1,1'-biphenyl-2-amin und 74,0 ml (0,53 mol) Triethylamin in 2,0 l Tetrahydrofuran werden bei einer Temperatur zwischen -10°C und -20 °C langsam mit einer Lösung von 56,3 g (0,27 mol) 2-Methyl-4-(difluormethyl)-1,3-thiazol-5-carbonylchlorid in 500 ml Tetrahydrofuran versetzt. Die Reaktionslösung wird für 2 h bei 0°C gerührt. Zur Aufarbeitung wird aufkonzentriert und mit Cyclohexan/Essigsäureethylester an Kieselgel chromatographiert.

Man erhält 43,88 g (44,5 % d. Th.) an *N*-(4'-Chlor-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-methyl-4-(difluormethyl)-1,3-thiazol-5-carboxamid mit dem  $\log P$  ( $pH_{2,3}$ ) = 3,26 und dem Schmelzpunkt 144°C.

5

Die Bestimmung der in den voranstehenden Tabellen und Herstellungsbeispielen angegebenen  $\log P$ -Werte erfolgt gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

10

Die Bestimmung erfolgt im sauren Bereich bei pH 2.3 mit 0,1 % wässriger Phosphorsäure und Acetonitril als Eluenten; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril.

15

Die Eichung erfolgt mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren  $\log P$ -Werte bekannt sind (Bestimmung der  $\log P$ -Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

Die  $\lambda_{\max}$ -Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.



### Anwendungsbeispiele

#### Beispiel A

#### 5 Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Lösungsmittel: 24,5 Gewichtsteile Aceton  
24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid  
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Sprühbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension von *Sphaerotheca fuliginea* inokuliert. Die Pflanzen werden dann bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % im Gewächshaus aufgestellt.

20

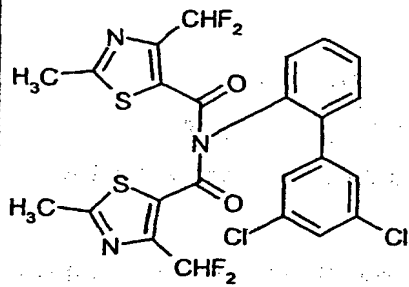
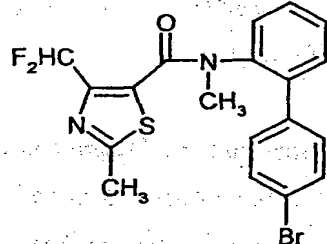
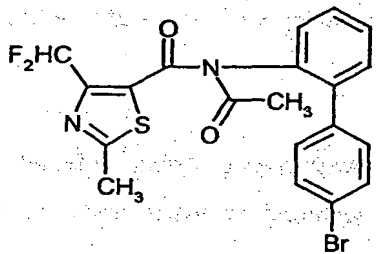
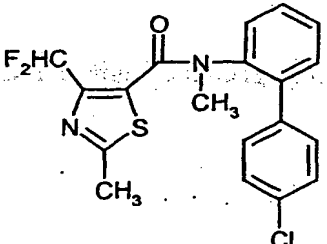
7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

25

Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

Tabelle A:

## Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Bsp.	Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wirkungsgrad
4		100	100
6		100	100
1		100	100
2		100	95

Beispiel B**Venturia - Test (Apfel) / protektiv**

- 5      Lösungsmittel:      24,5 Gewichtsteile Aceton  
                                 24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid  
Emulgator:              1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

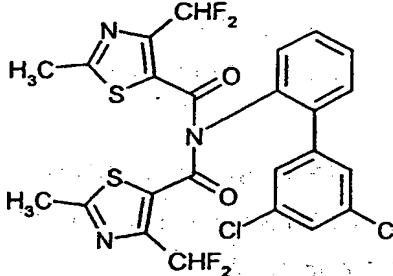
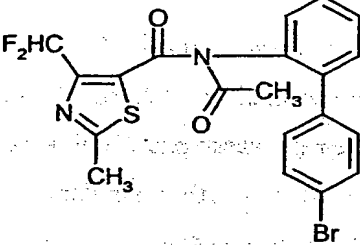
10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers *Venturia inaequalis* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

20      Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

25      10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

**Tabelle B:****Venturia - Test (Apfel) / protektiv**

Bsp.	Wirkstoff . . .	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wirkungsgrad
4		100	99
1		100	100

Beispiel C**Botrytis - Test (Bohne) / protektiv**

- 5      Lösungsmittel:      24,5 Gewichtsteile Aceton  
                                 24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid  
            Emulgator:      1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

- 10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 15      Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden auf jedes Blatt 2 kleine mit *Botrytis cinerea* bewachsene Agarstückchen aufgelegt. Die inokulierten Pflanzen werden in einer abgedunkelten Kammer bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit aufgestellt.

- 20      2 Tage nach der Inokulation wird die Größe der Befallsflecken auf den Blättern ausgewertet. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Tabelle C:			
Botrytis - Test (Bohne) / protektiv			
Bsp.	Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wirkungsgrad
4		500	94
1		500	98

Beispiel D**Alternaria-Test (Tomate) / protektiv**

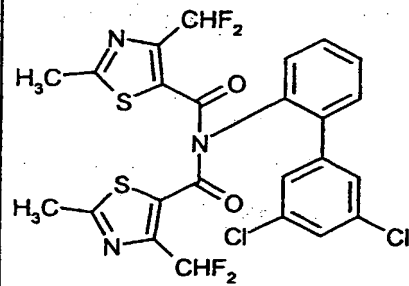
- 5      Lösungsmittel:            49 Gewichtsteile N,N-Dimethylformamid  
Emulgator:                    1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit besprüht man junge Tomatenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension von *Alternaria solani* inokuliert und stehen dann 24 Stunden bei 100 % relativer Feuchte. Anschließend stehen die Pflanzen bei ca. 96 % relativer Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 20°C.

20      7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

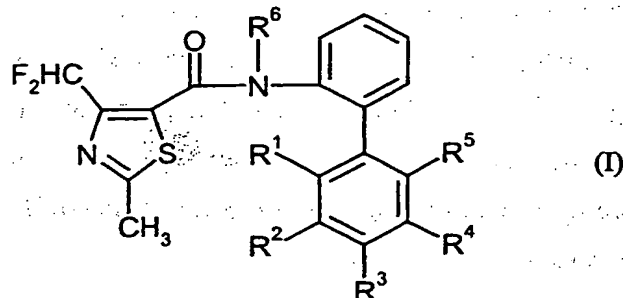
Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

<b>Tabelle D:</b>			
<b>Alternaria-Test (Tomate) / protektiv</b>			
<b>Bsp.</b>	<b>Wirkstoff</b>	<b>Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha</b>	<b>% Wirkungsgrad</b>
4		750	95



Patentansprüche

## 1. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I)



5 in welcher

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen stehen,

$R^1$  und  $R^2$  oder  $R^2$  und  $R^3$  außerdem gemeinsam für gegebenenfalls durch Halogen oder  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl substituiertes Alkenylen stehen,

15  $R^6$  für  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;  $-COR^7$ ,  $-CONR^8R^9$  oder  $-CH_2NR^{10}R^{11}$  steht,

20  $R^7$  für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_8$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl steht,

25

$R^8$  und  $R^9$  unabhängig voneinander für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_8$ -Halogenalkyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ -

C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

5 R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>12</sup> enthalten kann,

10 R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

15 R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>12</sup> enthalten kann,

20 R<sup>12</sup> für Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl steht.

2. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

25 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder iso-Propylthio, Cyclopropyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluor-methoxy, Trifluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trifluorethoxy, Difluor-methylthio, Difluorchlormethylthio oder Trifluormethylthio stehen,

35 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> oder R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> außerdem gemeinsam für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituiertes Butadien-diyl stehen,

5  $R^6$  für  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsul-  
fanyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ -  
 $C_3$ -alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-,  
Chlor- und/oder Bromatomen;  $-COR^7$ ,  $-CONR^8R^9$  oder  $-CH_2NR^{10}R^{11}$  steht,

10  $R^7$  für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ -  
 $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy, Halogen- $C_1$ - $C_3$ -  
alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-,  
Chlor- und/oder Bromatomen oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-  
2-yl steht,

15  $R^8$  und  $R^9$  unabhängig voneinander für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy- $C_1$ -  
 $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl, Halogen- $C_1$ - $C_3$ -alkoxy- $C_1$ -  
 $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor-  
und/oder Bromatomen stehen,

20  $R^8$  und  $R^9$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind,  
einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch  
Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8  
Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht  
benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder  $NR^{12}$   
enthalten kann,

25  $R^{10}$  und  $R^{11}$  unabhängig voneinander für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloal-  
kyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9  
Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

30  $R^{10}$  und  $R^{11}$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind,  
bevorzugt einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschie-  
den durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus  
mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere,  
nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder  
35  $NR^{12}$  enthalten kann,

$R^{12}$  für Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl steht.

3. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

5  $R^1, R^2, R^3, R^4$  und  $R^5$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Methoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluormethylthio oder Trifluormethylthio stehen,

10  $R^6$  für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, 15 Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethylsulfanyl, Difluorchlormethylsulfanyl, Trifluormethylsulfanyl, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl;  $-COR^7$ ,  $-CONR^8R^9$  oder  $-CH_2NR^{10}R^{11}$  steht,

20  $R^7$  für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, tert-Butoxy, Cyclopropyl; Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl steht,

25  $R^8$  und  $R^9$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl stehen,

30  $R^8$  und  $R^9$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin bilden, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch  $R^{12}$  substituiert sein kann,

$R^{10}$  und  $R^{11}$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl stehen,

$R^{10}$  und  $R^{11}$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin bilden, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch  $R^{12}$  substituiert sein kann,

$R^{12}$  für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl steht.

4. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher jeweils vier der Reste  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  für Wasserstoff stehen.

5. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^4$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und  $R^3$  die in einem der Ansprüche 1 bis 3 angegebenen Bedeutungen hat.

6. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  $R^2$ ,  $R^4$  und  $R^5$  für jeweils Wasserstoff stehen und  $R^1$  und  $R^3$  unabhängig voneinander die in einem der Ansprüche 1 bis 3 angegebenen Bedeutungen haben.

7. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  $R^1$ ,  $R^4$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander die in einem der Ansprüche 1 bis 3 angegebenen Bedeutungen haben.

8. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  $R^1$ ,  $R^3$  und  $R^5$  jeweils für Wasserstoff stehen und

$R^2$  und  $R^4$  unabhängig voneinander die in einem der Ansprüche 1 bis 3 angegebenen Bedeutungen haben.

9. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  
 5  $R^6$  für  $-\text{COR}^7$  steht und  $R^7$  für 4-(Difluormethyl)-2-methyl-1,3-thiazol-2-yl steht.

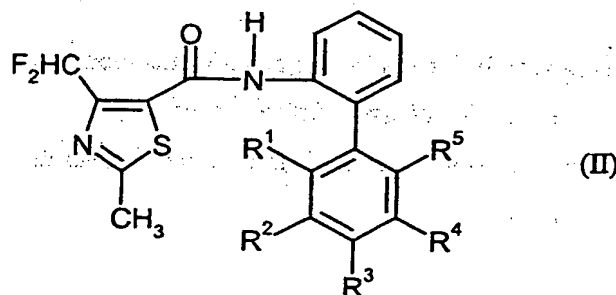
10. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  
 10  $R^6$  für  $-\text{COR}^7$  steht und  $R^7$  für Methyl, Ethyl, Cyclopropyl oder Trifluormethyl, insbesondere Methyl steht.

11. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  
 $R^6$  für  $-\text{CHO}$  steht.

12. Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  
 15  $R^6$  für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methylsulfinyl, Methylsulfonyl, Methoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl, insbesondere Methyl, iso-Propyl oder Cyclopropyl steht.  
 20

13. Verfahren zum Herstellen der Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man

25 (A) Thiazolylbiphenylamide der Formel (II)



in welcher

$R^1, R^2, R^3, R^4$  und  $R^5$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit einem Halogenid der Formel (III)



in welcher

$\text{R}^6$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat und

X für Chlor, Brom oder Iod steht,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

14. Mittel zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Thiazolylbiphenylamid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
15. Verwendung von Thiazolylbiphenylamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen.
16. Verfahren zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Thiazolylbiphenylamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
17. Verfahren zum Herstellen von Mitteln zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Thiazolylbiphenylamid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D277/56 A01N37/22 A01N43/78

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, BEILSTEIN Data, CHEM ABS Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2002 059086 A (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG; SWITZ.) 1 August 2002 (2002-08-01) Tabelle 4, Beispiele 4.19, 4.20, 4.26-4.28, 4.31, 4.32, 4.38, 4.39, 4.42-4.44 claims 1-5, 11-13	1-17
Y	EP 0 545 099 A (BASF AG) 9 June 1993 (1993-06-09) cited in the application Tabelle 4, Beispiel 4.6, Tabelle 5, Beispiel 5.6 claims 1, 4, 5, 9, 10	1-17
P, Y	DE 102 04 391 A (BAYER CROPS SCIENCE AG) 14 August 2003 (2003-08-14) cited in the application claims 1, 14-17; examples 1-22	1-17

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

31 March 2004

Date of mailing of the international search report

07/04/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

vanVoorst tot Voorst, M

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 03/10758

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☒ **Claims Nos.:**  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:  
**Although claims 15 and 16 relate to a method for treatment of the human or animal body, the search was carried out and was based on the stated effects of the compound or composition.**
2. ☐ **Claims Nos.:**  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ **Claims Nos.:**  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

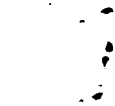
## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT 03/10758

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2002059086	A	01-08-2002	BR 0206678 A	10-02-2004
			CA 2433819 A1	01-08-2002
			CZ 20032018 A3	15-10-2003
			WO 02059086 A1	01-08-2002
			EP 1355879 A1	29-10-2003
			HU 0302581 A2	28-11-2003
EP 0545099	A	09-06-1993	AT 149487 T	15-03-1997
			AU 656243 B2	27-01-1995
			AU 2855492 A	27-05-1993
			CA 2081935 A1	23-05-1993
			CZ 9203448 A3	13-10-1993
			CZ 289478 B6	16-01-2002
			DE 59208113 D1	10-04-1997
			DK 545099 T3	24-03-1997
			EP 0545099 A2	09-06-1993
			ES 2098421 T3	01-05-1997
			GR 3023336 T3	29-08-1997
			HU 62861 A2	28-06-1993
			IL 103614 A	24-09-1998
			JP 3202079 B2	27-08-2001
			JP 5221994 A	31-08-1993
			JP 2001253802 A	18-09-2001
			JP 2001316210 A	13-11-2001
			KR 267518 B1	16-10-2000
			NZ 245194 A	27-02-1996
			PL 296677 A1	18-10-1993
			SK 344892 A3	08-03-1995
			US 5480897 A	02-01-1996
			US 5556988 A	17-09-1996
			US 5589493 A	31-12-1996
			US 5330995 A	19-07-1994
			ZA 9208977 A	19-05-1994
DE 10204391	A	14-08-2003	DE 10204391 A1	14-08-2003
			WO 03066610 A1	14-08-2003



12

13

14

15

16

17

18

19

20

21

22

23

24

25

26

27

28

29

30

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C07D277/56 A01N37/22 A01N43/78

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, BEILSTEIN Data, CHEM ABS Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	WO 2002 059086 A (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG, SWITZ.) 1. August 2002 (2002-08-01) Tabelle 4, Beispiele 4.19, 4.20, 4.26-4.28, 4.31, 4.32, 4.38, 4.39, 4.42-4.44 Ansprüche 1-5, 11-13	1-17
Y	EP 0 545 099 A (BASF AG) 9. Juni 1993 (1993-06-09) in der Anmeldung erwähnt Tabelle 4, Beispiel 4.6, Tabelle 5, Beispiel 5.6 Ansprüche 1, 4, 5, 9, 10	1-17
P, Y	DE 102 04 391 A (BAYER CROPSOURCE AG) 14. August 2003 (2003-08-14) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1, 14-17; Beispiele 1-22	1-17

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen:

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

31. März 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

07/04/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

vanVoorst tot Voorst, M

**Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)**

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☒ Ansprüche Nr.  
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich  
**Obwohl die Ansprüche 15 und 16 sich auf ein Verfahren zur Behandlung des menschlichen/tierischen Körpers beziehen, wurde die Recherche durchgeführt und gründete sich auf die angeführten Wirkungen der Verbindung/Zusammensetzung.**
2. ☐ Ansprüche Nr.  
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3. ☐ Ansprüche Nr.  
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

**Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)**

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

☐ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.

☐ Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT 03/10758

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2002059086	A	01-08-2002	BR 0206678 A	10-02-2004
			CA 2433819 A1	01-08-2002
			CZ 20032018 A3	15-10-2003
			WO 02059086 A1	01-08-2002
			EP 1355879 A1	29-10-2003
			HU 0302581 A2	28-11-2003
EP 0545099	A	09-06-1993	AT 149487 T	15-03-1997
			AU 656243 B2	27-01-1995
			AU 2855492 A	27-05-1993
			CA 2081935 A1	23-05-1993
			CZ 9203448 A3	13-10-1993
			CZ 289478 B6	16-01-2002
			DE 59208113 D1	10-04-1997
			DK 545099 T3	24-03-1997
			EP 0545099 A2	09-06-1993
			ES 2098421 T3	01-05-1997
			GR 3023336 T3	29-08-1997
			HU 62861 A2	28-06-1993
			IL 103614 A	24-09-1998
			JP 3202079 B2	27-08-2001
			JP 5221994 A	31-08-1993
			JP 2001253802 A	18-09-2001
			JP 2001316210 A	13-11-2001
			KR 267518 B1	16-10-2000
			NZ 245194 A	27-02-1996
			PL 296677 A1	18-10-1993
			SK 344892 A3	08-03-1995
			US 5480897 A	02-01-1996
			US 5556988 A	17-09-1996
			US 5589493 A	31-12-1996
			US 5330995 A	19-07-1994
			ZA 9208977 A	19-05-1994
DE 10204391	A	14-08-2003	DE 10204391 A1	14-08-2003
			WO 03066610 A1	14-08-2003

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**